

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2004-111085

(43)Date of publication of application : 08.04.2004

(51)Int.Cl.

H05B 33/14

(21)Application number : 2002-268518

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO  
LTD

(22)Date of filing : 13.09.2002

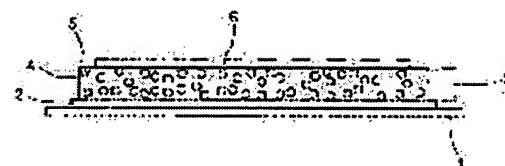
(72)Inventor : YATSUNAMI RYUICHI  
SAKAGAMI MEGUMI

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an electroluminescent element having a simple structure and long life, capable of emitting light with high brightness.

SOLUTION: The electroluminescent element comprises at least a pair of a positive electrode 2 and a negative electrode 6 for supplying power to the element, and a light-emitting layer 3, and particles 5 having different conductivities from each other are mixed into the light-emitting layer 3. Not only metal particles like indium-tin oxide or gold colloid, but also such a substance having an absolute value of work function ranging between 1.25 eV and 5.5 eV, and further, the mixture of above substances, are used as the particles 5.



BEST AVAILABLE COPY

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of  
rejection]

[Kind of final disposal of application other than

the examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

JP 2004-111085 A 2004.4.8

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-111085

(P2004-111085A)

(43) 公開日 平成16年4月8日(2004.4.8)

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

H05B 33/14

F1

H05B 33/14

B

テーマコード (参考)

3K007

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願2002-238518 (P2002-238518)  
 (22) 出願日 平成14年9月13日 (2002.9.13)

(71) 出願人 000005821  
 松下電器産業株式会社  
 大阪府門真市大字門真1006番地  
 (74) 代理人 100097445  
 弁理士 岩橋 文雄  
 (74) 代理人 100103355  
 弁理士 坂口 智康  
 (74) 代理人 100109667  
 弁理士 内藤 浩樹  
 (72) 発明者 八浪 竜一  
 大阪府門真市大字門真1006番地 松下  
 電器産業株式会社内  
 (72) 発明者 坂上 恵  
 大阪府門真市大字門真1006番地 松下  
 電器産業株式会社内  
 Fターム(参考) 3K007 AB02 AB11 AB18 DB03

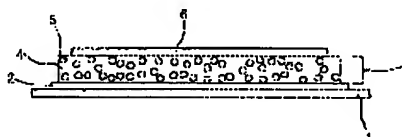
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセント素子

## (57) 【要約】

【課題】 本発明は、簡易な構造で長寿命であり、高輝度の発光を行うことができる有機エレクトロルミネッセント素子を提供することを目的とする。

【解決手段】 本発明の有機エレクトロルミネッセント素子は、素子に電力を供給するための少なくとも一組の陽極2と陰極6と、発光層3を備え、発光層3内には電気伝導度の異なる粒子5を混入させたことを特徴とする。粒子5としてはインジウムスズ酸化物や金コロイドなどの金属粒子を始めとして、その仕事関数の絶対値が1.25以上5.5 eVの範囲にあるような物質、さらにはそれらの混合物からなる粒子を用いる。

【選択図】 図1



(2)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

通電時に発光する発光層と、前記発光層を挟んで電力を供給する一組の電極を備え、前記発光層内には電気伝導度の異なる領域が分散して配設されたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセント素子。

## 【請求項 2】

前記発光層において、電気伝導度が相対的に大きな領域の周りを相対的に小さな領域が取り囲んでいることを特徴とする請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

## 【請求項 3】

前記電気伝導度が相対的に大きな領域が少なくとも一種の粒子状物質から構成されたことを特徴とする請求項 2 記載の有機エレクトロルミネッセント素子。 10

## 【請求項 4】

前記粒子状物質が少なくとも素子の発光波長域において実質的に透明であることを特徴とする請求項 3 記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

## 【請求項 5】

インジウムスズ酸化物からなる粒子状物質を少なくとも一種含むことを特徴とする請求項 3 記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

## 【請求項 6】

前記粒子状物質が少なくとも一種の金属からなる粒子であることを特徴とする請求項 3 記載の有機エレクトロルミネッセント素子。 20

## 【請求項 7】

イオン化ポテンシャルまたは仕事関数の絶対値が 1.25 eV 以上、5.5 eV 以下であるような粒子状物質を少なくとも一種含むことを特徴とする請求項 3 記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

## 【請求項 8】

前記領域が複数の異なる電気伝導度またはイオン化ポテンシャルを有する領域からなることを特徴とする請求項 1～3 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセント素子。

## 【請求項 9】

前記粒子状物質が複数の異なる電気伝導度またはイオン化ポテンシャルを有する粒子状物質からなることを特徴とする請求項 1～3 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセント素子。 30

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、簡易な構造で高輝度発光を行うことができる有機エレクトロルミネッセント素子に関するものである。

## 【0002】

## 【従来の技術】

従来、蛍光性の物質を平面基板上に蒸着や印刷等の方法によって塗布することによって発光層を形成し、電極で挟み込んで通電することで発光を得る素子として無機エレクトロルミネッセンス素子（以下、無機 EL 素子）と有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機 EL 素子）が知られている。以下、無機 EL 素子と有機 EL 素子を合わせて EL 素子という。このうち無機 EL 素子は、時計の文字盤や携帯機器の表示部のバックライト用等として既に実用化されており、有機 EL 素子も最近の研究の進展によって実用化段階に移行しつつある。これらの EL 素子は発光ダイオードのような点光源と異なり、発光が面状で得られるために独自の用途が期待されている。 40

## 【0003】

とくに有機 EL 素子に関しては、無機 EL 素子に比較して発光の効率が高く直流の低電圧で高い輝度が得られることから大きな注目を集め、単純な発光パネルはもとより、RGB 各色を交互に配置し制御点灯することで平面ディスプレイを構成するための研究が広く行 50

(3)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

われている。こうした有機EL素子一般については例えば（非特許文献1）、（非特許文献2）に詳しい。

#### 【0004】

このように今後の発展が期待される有機EL素子であるが、現状では面積あたりの発光強度（以下、輝度という）に限界があり、例えば屋外でも視認性のよいバックライトへの応用や照明用途への展開は難しいという問題がある。有機EL素子の輝度を向上させるには、発光層の構成材料を検討することで発光効率を向上させる方法か、または単純に印加する電圧を上げて注入するエネルギーを増大させる方法等があるが、いずれの方法も限界がある。

#### 【0005】

ところで、発光層材料は従来からの研究の進展によってその効率がほぼ理論的な上限に近づいており、これ以上大幅な向上は望めない段階にまで来ている。一方、有機EL素子への印加電圧を高くすると、ある程度までは電圧に応じて輝度が向上するが、効率は次第に低下し、最終的には不安定部位から劣化が始まって素子が破壊されてしまう。従って従来の技術のアプローチを踏襲するだけでは高輝度発光を実現する有機EL素子の姿は見えてこない状況にある。

#### 【0006】

このような問題に対し、山形大学の城戸らの研究グループは（非特許文献3）で層状構造の素子を提案した。

#### 【0007】

（非特許文献3）で提案された素子は、透明電極によって電気的に直列接続された複数の有機EL素子を互いに重なるように層状に積み重ねたもので、素子一つ分の面積に複数の素子が重ねて収納される形になり、例えば2つの素子を重ねた構造にすれば同一面積から2倍の光量を取り出すことができるというものである。この素子の構造は、積層された各素子に電圧が分配されるため駆動電圧は積層数倍になるが、発光輝度も積層数倍になることが期待でき、積層された個々の素子単位で見れば寿命と効率を考慮した最適な電圧条件で駆動できることになるため、輝度改善には効果的な構造である。

#### 【0008】

しかしながら、このような構造の有機EL素子を得るためには、複数の素子の特性を揃えて正確に積層することが必要で、これには非常に高度な成膜技術と複雑な工程を必要とし、容易には実現できない。実用上は有機EL素子の積層可能数は制限されると予想されるし、有機EL素子は互いに直列に接続されているため、少しでも膜厚等が異なると各素子間の電圧分布が異なることになり、総合的に素子特性を十分に発揮できないおそれがあった。

#### 【0009】

##### 【非特許文献1】

セイゾー・ミヤタ（Seizo Miyata）、外1名著、「ゴールデン・アンド・ブリーチ・サイエンス（Golden and Bleach Science）オーガニック・エレクトロルミネッセント・マテリアル・アンド・デバイス（Organic Electroluminescent Materials and Devices）」、ゴードンアンドブリーチサイエンスパブリッシャーズ出版、1997年

##### 【非特許文献2】

城戸淳二監修、「有機EL材料とディスプレイ」、シーエムシー出版、2001年4月20日

##### 【非特許文献3】

城戸、外5名、「電荷発生層を有する高量子効率有機EL素子」、第49回応用物理学関係連合講演会講演予稿集No3、p. 1308

#### 【0010】

##### 【発明が解決しようとする課題】

このように従来の有機EL素子では発光輝度に限界があるが、構造的な改善を行ってさら

(4)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

に高い輝度を得ようとする素子の構造が複雑になり、素子の作製が難しくなるという問題があった。

【0011】

そこで本発明は、簡易な構造で長寿命であり、高輝度の発光を行うことができる有機EL素子を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために本発明の有機EL素子は、発光層を挟んで電力を供給する一組の電極を備え、発光層内には電気伝導度の異なる領域が分散して配設されたことを特徴とする。

10

【0013】

これにより、簡易な構造で長寿命であり、高輝度の発光を行うことができる。

【0014】

【発明の実施の形態】

本発明の請求項1に記載された発明は、通電時に発光する発光層と、発光層を挟んで電力を供給する一組の電極を備え、発光層内には電気伝導度の異なる領域が分散して配設されたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセント素子であり、電気伝導度の異なる領域が混在しているので、電極／発光層／電極という基本構造（以下、単素子という）が多数直並列接続された構造と等価な構成を容易に実現でき、簡易な構造でありながら長寿命に高輝度発光を行うことが可能な素子を実現することができる。印加電圧の上昇は実用上数十Vであり、商用電源で駆動でき、面状高輝度発光デバイスが実現できる。

20

【0015】

本発明の請求項2に記載された発明は、発光層において、電気伝導度が相対的に大きな領域の周りを相対的に小さな領域が取り囲んでいることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセント素子であり、単素子が多数直並列接続された構造と等価な構成を簡単に実現でき、簡易な構造でありながら長寿命に高輝度発光を行うことが可能な素子を実現することができる。

【0016】

本発明の請求項3に記載された発明は、電気伝導度が相対的に大きな領域が少なくとも一種の粒子状物質から構成されたことを特徴とする請求項2記載の有機エレクトロルミネッセント素子であり、素子の作製はたとえばスピコートなどの簡易な方法で行うことができ、その場合はプロセスもシンプルであり、高価な真空装置を多用することもないため、安価な素子を提供することができる。

30

【0017】

本発明の請求項4に記載された発明は、粒子状物質が少なくとも素子の発光波長域において実質的に透明であることを特徴とする請求項3記載の有機エレクトロルミネッセント素子であり、簡易な構造で効率の高い発光を行うことができる。

【0018】

本発明の請求項5に記載された発明は、インジウムスズ酸化物からなる粒子状物質を少なくとも一種含むことを特徴とする請求項3記載の有機エレクトロルミネッセント素子であり、簡易なプロセスで作製でき、長寿命に高輝度発光を行うことが可能な素子を実現することができる。

40

【0019】

本発明の請求項6に記載された発明は、粒子状物質が少なくとも一種の金属からなる粒子であることを特徴とする請求項3記載の有機エレクトロルミネッセント素子であり、簡易なプロセスで作製でき、長寿命に高輝度発光を行うことが可能な素子を実現することができる。

【0020】

本発明の請求項7に記載された発明は、イオン化ポテンシャルまたは仕事関数の絶対値が1.25 eV以上、5.5 eV以下であるような粒子状物質を少なくとも一種含むことを

50

(5)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

特徴とする請求項3記載の有機エレクトロルミネッセント素子であり、さまざまな材料を組み合わせた素子を簡易なプロセスで作製でき、長寿命に高輝度発光を実現することができる。

【0021】

本発明の請求項8に記載された発明は、領域が複数の異なる電気伝導度またはイオン化ポテンシャルを有する領域からなることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセント素子であり、さまざまな材料を組み合わせた素子を簡易なプロセスで作製でき、効率的で高輝度の発光を行う素子を実現できる。

【0022】

本発明の請求項9に記載された発明は、粒子状物質が複数の異なる電気伝導度またはイオン化ポテンシャルを有する粒子状物質からなることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセント素子であり、それぞれの粒子状物質が最適に作用することで、効率的かつ高輝度の発光を行う素子を実現できる。

【0023】

以下図1～図7を用いて本発明の実施の形態を詳細に説明する。

【0024】

(実施の形態1)

本発明の実施の形態1の有機EL素子について説明する。図1は本発明の実施の形態1における有機EL素子の全体構成図である。有機EL素子の動作原理、基本的な素子構成については詳細な説明を割愛し、本実施の形態1を説明するのに必要な部分の説明のみにとどめる。

【0025】

図1において、1は基板、2は有機EL素子に電力を供給するための一方の電極（以下、実施の形態1においては陽極という）、3は発光層、4は発光層3を構成するマトリックス材料（以下、マトリックスという）、5は発光層3を構成する粒子（以下、粒子という）、6は素子に電力を供給するためのもう一方の電極（以下、実施の形態1においては陰極という）である。

【0026】

基板1は、有機EL素子全体を保持することがその主たる機能であるが、機械的強度のほかに、平坦性、絶縁性、素子劣化の原因となる水分や酸素ガス等の物質透過の遮断性、等の性質が要求される。また、基板1から光を外部に取り出すために発光波長における透明性も要求される。これらすべての要求を満たすものとして一般にはガラスが使用される。本実施の形態1においても、ガラスを基板1として使用する。もちろん、基板1はガラスに限られるものではなく、上述した各要求を満たす素材であればどのような材料でもかまわない。例えば、基板1として使用できるものとして、ガラスの他に各種単結晶/多結晶類、セラミックス、プラスチック等をあげることができる。

【0027】

なお、ここでいう平坦性とは、陽極や発光層等において $\mu\text{m}$ 以下のレベルの薄い膜（以下、薄膜という）に対する平坦性のことであって、巨視的な意味ではない。巨視的にみれば基板1は平坦である必要はなく、屈曲していたり球面や円筒面を基板1として有機EL素子が構成されていてもかまわない。さらに、後述する陽極2と基板1を兼ねる構成をとることもでき、その場合には基板1は導電性の物質で構成される。

【0028】

実用上、有機EL素子に対する電力供給の形態は様々なものが考えられる。単純に直流電圧を供給する場合もあれば、交流や脈流、あるいは特定のパターンまたは周期パターンで電力供給することもある。従って、電極は常にプラス電圧のみを印加するわけではないが、実施の形態1においては説明を単純化するため、基板1上において通常の素子駆動状態ではプラス電圧を印加する陽極2として説明する。

【0029】

陽極2は、発光層3の発光部位に対して均一に電圧を印加する必要がある。また、発光を

(5)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

取り出す場合には透明であることも要求される。このような性能に対する要求から、陽極 2 は ITO (インジウムスズ酸化物) の薄膜で形成する。ITO は一般に多用されるもので、可視域において高い光透過率をもち、しかも電気抵抗が低いという特性がある。

#### 【0030】

図 1 に示す発光層 3 は単純な単層構造である。ただ、発光層 3 は単層構造に限られないし、複数の特性 (たとえば発光波長) の異なる発光層から構成される素子でもよい。発光層 3 は、陽極/陰極から注入される正負のキャリアが再結合して解放される電気エネルギーが光のエネルギーに変換される部分である。マトリックス 4 は発光層 3 を構成する主たる部分である。マトリックス 4 として採用できる材料は、基本骨格とそれに対して様々な置換基等が導入された化合物が好適で、概ね低分子系と高分子系に二分することができる。19  
低分子系の代表的な材料としては、Alq<sub>3</sub> (キノリノールアルミ錯体) 系化合物群、TPD (トリフェニアルジアミン) 及びトリフェニルアミン系化合物群等がある。また、高分子系の代表的な材料としては、PPV (ポリフェニレンビニレン) 系化合物群、PF (ポリフルオレン) 系化合物群等がある。マトリックス 4 での発光がキャリアの再結合によって解放されるエネルギーを基にして発生するものである限り、本発明によるところの粒子を包含させて発光層とすることによって輝度を改善することができる。本実施の形態 1 では、マトリックス 4 の材料としてポリフルオレン誘導体と総称される高分子系化合物群を採用している。

#### 【0031】

そして、薄膜を形成するための作製方法も材料に応じて異なる。一般的には低分子系化合物を用いた素子の場合には発光層は真空蒸着などの方法で作製されることが多く、一方高分子系ではスピンコート法等が用いられることが多い。異種材料の混合物であっても構わない。20

#### 【0032】

発光層 3 のもう一つの構成要素である粒子 5 は、少なくとも粒子 5 が分散されるマトリックス 4 よりも相対的に電気伝導度が高いことが必要である。なお、相対的に電気伝導度が高いというのは、例えば異なる 2 種の物質を一定の断面積、一定の長さで作製しその両端の電気抵抗を測定したときにその値が一方より小さいという意味であり、単位は S/m である。マトリックス 4 に分散された粒子 5 からマトリックス 4 に対して正負のキャリアが提供される必要があり、そのために粒子 5 の電気伝導度がマトリックス 4 の値よりも大きく30  
なければならない。これは、電圧印加が行われた際にマトリックス 4 よりも容易に粒子 5 内を電流が流れるということに等しい。

#### 【0033】

粒子 5 として採用可能な物質は様々なものが考えられるが、代表的な物質としてインジウムスズ酸化物、金属粒子、半導体粒子が挙げられる。上述した材料を始めとしてほとんどのマトリックス 4 の材料は、主として有機物質からなる分子であるため、電気伝導度が非常に小さい。一般に有機 EL 素子に用いられるような共有結合で結合している分子には、電気伝導を司るキャリアがほとんど存在しておらず、外部から電界をかけて注入された少量のキャリアがホッピング等によって伝搬するだけだからである。概ねこれらのマトリックス 4 の抵抗率は  $10^{10} \Omega \cdot \text{cm}$  を遙かに越えており、絶縁体に分類されるべきもの40  
である。

#### 【0034】

周知のように抵抗率は物性値の中でもその範囲が大変広いものであり、貴金属の  $10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$  オーダーからポリエチレンなどのプラスチックが示す  $10^{20} \Omega \cdot \text{cm}$  オーダーまでに大きく広がっている。従って、一般にそれほど電気伝導度が大きくないとされている多くの物質が、本実施の形態 1 では粒子 5 の候補となり得るものである。

#### 【0035】

続いて、別の観点から粒子 5 について説明する。詳細は後述するが、素子が動作するとき粒子 5 はマトリックス 4 内にあって微小な電極として作用する。従って粒子 5 は電気伝導度という点だけでなく、マトリックス 4 に対する良好な電極としての特性を併せもつこと50



(7)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

が要求される。ところで有機EL素子の場合一般にキャリア注入の際、発光層3と電極の間には電気的な障壁が存在する。この障壁は、簡単には発光層3に電極から正負のキャリアを注入するための抵抗のようなものである。この抵抗が大きいと、当然素子を点灯するために必要な駆動電圧が上昇する。そしてこの抵抗の大きさを決定するのは、電極の仕事関数とマトリックス4のイオン化ポテンシャルや電子親和力との差である。従って、マトリックス4の材料と電極の間には最適な組み合わせが存在する。そしてこのことから粒子5の仕事関数を考慮して素子の設計を行うことが重要となる。

【0036】

さて、以上説明したような様々なマトリックス4の材料に対して最適な組み合わせを提供できる電極の仕事関数の範囲は、概ね1.25 eV以上、5.5 eV以下である。すなわち、電極とくに陰極6側の電極の仕事関数は小さいことが望ましいが、物質の仕事関数は理論的に0にはできず、自然下限が存在する。従来電極材料として知られている物質の仕事関数の下限はほぼ1.25 eVである。また一方大きい側もマトリックス4として用いられる物質の物性によってある程度制限され、5.5 eV以上の仕事関数をもつ電極の採用はマトリックス4との障壁を増大させ望ましいものではないからである。そしてこれによって、様々な材料を組み合わせた素子を簡易なプロセスで作製でき、効率的で高輝度の発光を行う素子を実現できる。

【0037】

ところで、粒子5は互いに異なる特性を持った複数の粒子の混合物であってもよい。ここでいう混合物には、例えば(1)異なる特性の粒子状物質をマトリックス4内に同時に混合したもの、あるいは(2)異なる特性を持った粒子が互いに付着しているものを混合したもの、(3)互いに異なる物質の一方が一方を不完全に覆っているような粒子を混合したもの、(4)平板状で表裏で特性が異なる粒子を混合したもの、(5)一方が粒子で他方がその表面に吸着した分子種であるもの、(6)結晶の異方性により結晶の向きによって特性が異なるもの、等が含まれる。そしてこのような混合物として粒子5をマトリックス4内に導入することにより、一層の素子特性の向上が期待可能になるものである。

【0038】

さて、このほか粒子5備えるべき条件として大きさがある。粒子5の少なくとも1つの軸方向の大きさは、発光層3の厚みよりも小さいことが必要である。これは、粒子5が発光層3よりも大きいと陽極2と陰極6が短絡してしまい、発光素子として機能しなくなるからである。そしてこれ以外の特性、例えば形状や構成材料については上述したとおり電気伝導度と仕事関数を除けばとくに制限はない。またここでは粒子とネーミングしているが、平板状、あるいは針状、棒状であっても構わない。そして、素子形成以前には明確な形状を有さないが、素子を作成する過程で例えば相分離のような過程を経ることによって形成される領域のようなものも含むものである。いずれの場合も電気伝導度が発光層3と異なる領域が形成される。

【0039】

実施の形態1においては粒子5としてITO（インジウムスズ酸化物）粒子を使用している。ITOは既に説明したように可視域で実質的に透明でありながら高い電気伝導性を持つ特異な材料である。しかもITOは一般的に用いられる発光層3の材料よりも電気伝導度が高く、またその仕事関数は約4.8 eVであり本発明でいうところの電気伝導性の粒子、または周囲よりも電気伝導度の大きな領域を構成するものとして適している。しかも簡易なプロセスで粒子を形成することができる。

【0040】

次に、図1に示す陰極6は蒸着されたアルミニウム薄膜である。本実施の形態1における陰極6は、陽極2と同様に、通常素子駆動状態において素子に対してマイナスの電位を与える極として説明する。陰極6も陽極2と同様に、発光面に対して均一な電圧を印加できるものでなければならない。いわゆるトップエミッションと呼ばれる素子構成をとる際には、光取り出しのためにITO等の透明電極が用いられるが、本実施の形態1では陽極2が透明電極であり、光取り出しを陽極2方向に行うことができるため不透明なアルミニ

(8)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

ウムを用いることができる。

#### 【0041】

以上、実施の形態1における素子構成は以上の通りであるが、これらは最低限必要な構成要素を説明したものである。有機EL素子を実用的に機能させるためには、例えば素子を空気中の酸素や水分などに起因する劣化から守るための封止や、陽極・陰極／発光層間のキャリア注入を容易にするためのキャリア注入層、効率向上のためのキャリア輸送層の採用等いくつかの構成要素の追加が必要である。これらの構成は本発明とは関係が乏しいため、ここでは詳細な説明を省略する。このような構成を付加することでさらに素子特性の向上を図ることができる。

#### 【0042】

続いて、有機EL素子の輝度とその向上の限界について以下詳細に説明を行う。上述したように、素子の輝度を向上させる方法として、発光層3の材料の発光効率を改善するという方法がある。これは、電極から注入された正負両キャリアが再結合してエネルギーを解放する際にそのエネルギーが100%光エネルギーに変換されるような材料系開発を目標に輝度を向上させるものである。

#### 【0043】

素子に注入された正負キャリアが再結合すると、発光層を構成する材料中の分子が励起される。励起された分子は一般に緩和過程を経て基底状態に戻るが、その緩和過程の一つが発光による緩和である。そのほか熱的な緩和もある。ある分子が励起された際に、発光によって緩和するか、または熱的に緩和するかはその分子構造に依存するところが大きい。すなわち分子種によって発光しやすい分子と発光しにくい分子がある。従って、発光層の発光効率を向上させるためには発光によって緩和する傾向がより強い分子種を発光層3の材料に選択して採用することが必要である。

#### 【0044】

さて、上述した輝度向上の限界の一つにこの変換効率がある。ある量のキャリアが発光層3に注入された際に、どの程度の割合で光に変換されるかの割合を発光の量子収率と呼んでいる。理想は発光の量子収率が100%の材料であり、この場合、注入された電気エネルギーは完全に光に変換されることになる。この点に関しては、近年開発が進み、発光層3に採用される材料の発光の量子収率は高いものではほぼ100%に達しており、ある意味で理論的な上限に達しているといえる。従って、このような量子収率100%等の高性能の材料を発光層3に用いる方法を採る限り、効率向上による輝度改善は限界にきている。

#### 【0045】

さらにもう一つの輝度向上の方法として印加電圧を高くする方法がある。印加電圧を高くしても輝度向上には限界があることは既に説明したが、その原因は2つある。1つはキャリア結合効率の低下であり、もう1つは界面の破壊である。そこでこの2つの原因についてそれぞれ説明する。

#### 【0046】

まず、キャリア結合効率について説明する。前述したような発光の量子収率が100%近い材料であっても、その発光エネルギーの源は注入される正負のキャリアであるので、キャリアの量が少ないと発光することができないし、逆にキャリアが増大すると次第に強く光るようになる。有機EL素子において正負のキャリアが電極から発光層3に注入されると、印加された電界によって対極へ向かって移動していく。そして正負キャリアは反対の電荷を持っているため互いにすれ違うように移動する。このとき、発光層3の通過過程において、反対電荷のキャリアと出会ったものだけが結合によってエネルギーを解放できが、印加される電圧が高いと多量のキャリア注入も行われるが、エネルギーを解放することなく対極に到達してしまうキャリアの数も増大する。すなわち、互いに結合できなかったキャリアはただ素子中を通過したのみであり、電気的には単に抵抗内を流れたにすぎない。この場合、エネルギーは熱として損失される。従って、注入されたキャリアのうち光に変換される割合が低下する。さらに電圧を上げると、非結合性のキャリア数が増え発光の

(9)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

効率は益々低下する。電圧を上げると注入されるキャリア数は増大していくので、効率は悪いながら輝度は向上するが、実用上、また後述する界面破壊の点からも、電圧を過度に上昇させるのは有利とはいえない。このようにキャリア結合効率の低下という原因のため、印加電圧を増大させることによる輝度改善には問題があるものであった。

【0047】

次に界面の問題について説明する。素子に電圧が印加されると、電圧は素子内の各界面（陽極－発光層界面、陰極－発光層界面）と発光層3に分配される。このとき発光層3と電極の界面は異種材料の接合面であるために、予定外の吸着物質や局所的に接合が弱い部分が存在している。また電氣的にも障壁が存在するし、化学的にも反応性が高い金属と有機物が接している等、不安定な要因が多く存在しているため、過度の電圧印加がなされると電位差によって破壊される。一旦破壊された部位は発光に寄与しないのはもとより、不安定な物質の生成等により周辺部分に破壊領域を広げていき、結果的に有機EL素子全体を破壊してしまう。この界面破壊は印加電圧の上昇とともに、急激にその危険性を増すため、過度の電圧印加は避けなければならない。このように印加可能な電圧は界面の問題からも上限があり、電圧上昇による輝度向上を制限する。

【0048】

さて、以下、本発明の実施の形態1における素子の作製法、構造並びに動作を詳細に説明する。図2は本発明の実施の形態1における有機EL素子の作成手順図である。実施の形態1の素子作製に使われた粒子5はITOであって、その形状はほぼ球形、粒径は約50 nmである。本発明を実施するには原理的に粒子の大きさには制限はないが、対象とする技術分野の発光素子の厚みが通常数百nmから数μmを想定しているので、これらに対応できるように50 nmの粒子の大きさを選択している。

【0049】

図2に基づいて基本的な作成手順の説明をすると、基板1を洗浄し、材料の調製を行う。材料調整の条件は、ポリフルオレン系高分子をパラキシレンに溶解し、ITO粒子を添加して超音波分散を行い、60℃で過熱して振とうしたものである。これをスピンコートで基板1上に薄膜形成し、窒素常圧雰囲気下で加熱する。その後陰極を真空蒸着するものである。なお、最後に特性をチェックしなければならない。

【0050】

先ずいくつかのモデルを提示して本発明の原理の説明を行う。図3(a)は本発明の実施の形態1における粒子を含まない有機EL素子の構成図、図3(b)は本発明の実施の形態1における粒子を比較的少量含む有機EL素子の構成図、図3(c)は本発明の実施の形態1における粒子を比較的多量に含む有機EL素子の構成図である。また図4(a)は本実施の形態1における粒子を含まない有機EL素子内の電界分布の説明図、図4(b)は本実施の形態1における粒子を含んだ有機EL素子内の電界分布の説明図、図5(a)は本実施の形態1における粒子を比較的少量含む有機EL素子内のキャリアの流れの説明図、図5(b)は本実施の形態1における粒子を比較的多量に含む有機EL素子内のキャリアの流れの説明図である。

【0051】

図3(a)に示す素子は発光層3に粒子5を含まない素子であって、その発光層3の膜厚は約100 nmである。図3(b)に示す素子は発光層3に粒子5を比較的少量含む素子であって、その膜厚は約250 nmであり、図3(c)に示す素子は発光層3に粒子5を比較的多量に含む素子であって、その膜厚は700 nmである。図3(a)(b)(c)の素子においてはマトリックス4内のITO粒子5の分散は均一であり、偏り等はない。

【0052】

一方、図4(a)(b)は素子にかかる電位の様子を模式的に示すものであり、また、図5(a)(b)では発光層3内における電流の状態を説明するために発光層内の微小部分を拡大して模式的に示している。図4(b)において、21は粒子5と陽極2及び陰極6の間のギャップである。また、図5(a)(b)において、11は発光層3内を移動する負電荷キャリア、すなわち電子の流れを模式化した線、12は発光層3内に加えられてい

(10)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

る電界の方向を表す矢印である。

【0053】

まず、図3(a)に示すように、発光層3内に粒子5を含んでいない素子に電圧を印加した場合を説明する。ここで、素子には適正な電圧が印加され、マトリックス4に対して適切な電極が使われており、注入されたキャリアはすべて発光層内で結合するものとし、またそれによって解放されるエネルギーはすべて光に変換されるものとする。なお、これらの仮定は説明を簡単にするだけで、本発明の本質的な内容に対して何らの影響も与えるものではない。

【0054】

さて、陽極2と陰極6から発光層3内に注入された正負それぞれのキャリアは、発光層3を構成する分子上を電位勾配によって生じる電界に従って正電荷は陰極6方向へ、また同様に負電荷は陽極2方向へホッピングしながら移動していく。そして発光層3内で出会った正負の電荷は、対で消滅してエネルギーを分子に渡し、これを受け取った分子は励起される。励起された分子は発光しながら緩和する。この結果、素子から光が放出される。このとき素子にかかる電圧は、発光層3内において図4(a)に示すように分布する。図3(a)の素子の発光層3内は一樣であるので電位も一樣に減少するような勾配が生じる。この勾配が注入されたキャリアを移動させる。

【0055】

次に、図3(b)の素子に通電した場合を説明する。陽極2と陰極6からキャリアが注入され、発光に至る過程の説明は図3(a)で説明したことと同様であるから説明を省略し、ここではキャリア移動を起こす発光層3内での電位勾配について説明する。通電に伴う発光層3内の電位の状態は図4(b)のようになる。図3(a)素子の発光層3内では電位勾配は一樣な変化であったが、図3(b)の素子の発光層3内にはITOの粒子5が入っているため、発光層3内の電位勾配は一樣に変化する分布ではなくなる。ITO粒子は導電性が高いため、その内部の電位は一樣であり内部の電位勾配はない。従って、発光層3にかかる電位差はITO粒子と陽極2、ITO粒子と陰極6の間にあるギャップ21に分配される。そこで、さらに詳細に図3(b)の素子の構造と素子にかかる電位勾配の様子を検討すると、ITO粒子5と陽極2の間は電極/発光層/電極という図3(a)の素子と同様の構造(単素子)ができていることが分かる。また、これはITO粒子5と陰極6の間についても同様であって、結局図3(b)に示す素子は図3(a)の素子構造が2つ直列につながったものと見なせることが分かる。

【0056】

図3(b)に示す素子の発光層3の膜厚は250nm、ITO粒子5の大きさが約50nmであるため、図3(b)は発光層の厚さ100nmの単素子が二つ直列接続されたもの、すなわち図3(a)の素子が2つ直列接続されたものと等かである。そこで例えば、図3(a)の素子に対して5Vの電圧を印加して1000cd/m<sup>2</sup>の輝度が得られたとすると、図3(b)素子に対しては図3(a)素子に対する2倍の電圧、すなわち10Vを印加すれば、単素子毎に1000cd/m<sup>2</sup>の輝度が得られ、その結果は2000cd/m<sup>2</sup>の輝度を得ることができる。

【0057】

次に図3(c)の素子についての説明を行う。図3(c)の素子は図3(b)素子の発展系である。図3(c)に示す素子では電流が発光層3内を流れる間に複数のITO粒子5を通過する。ITO粒子5はマトリックス4内に立体的に分布しているが、分布が均一であることと、電流はその特性から最も抵抗少なく流れることができる経路を選択して進むことから、平均的にみて電流経路は例えば4つのITO粒子5を経由して電流は流れるものと等価である。これは、図3(c)の素子が、5個の単素子が直列接続された構造が並んでいるものに等しいことを示している。図3(c)の素子の膜厚は700nmであるので、単素子の発光層3の厚さは100nm、すなわち図3(a)の素子と同じである。従って、図3(c)の素子には図3(a)の5倍の電圧、すなわち25Vを印加すれば5000cd/m<sup>2</sup>もの輝度が得られることになる。

(11)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

## 【0058】

さて、ここで発光層3内に混合される粒子5の数と膜厚との関係を説明する。混合される粒子5の量が少ない、すなわち濃度が低いときマトリックス4内の粒子の分布状態は図5(a)に示すようになる。また逆の場合は図5(b)のようになる。これは膜厚に対して粒子の大きさを変えたときにも同様である。これらをどのような配合比率、またどのような粒径の粒子5を混合するかは、マトリックス4の種類や要求される性能によって適宜変更されるべきである。

## 【0059】

マトリックス4の種類によって最適な駆動条件は異なるため、まず図3(a)のような単純な素子を作製して最適条件を探り、その最適条件の単素子を再現できるような粒子混合系を設計すればよい。すなわち、ある程度の膜厚を高い電圧で駆動すると効率がよいマトリックス4については図5(a)のような構造を、より薄い膜厚を低電圧で駆動したときに高い効率を示すマトリックス4であれば図5(b)のような構造をとればよい。いずれの場合も電流(電子の流れを模式化した線11参照)はその電気抵抗が最も小さくなるような経路、すなわち電界方向に向いてなるべく多くのITO粒子5を経由して流れようとする。その結果、素子全体でみた場合に粒子5の分布が一樣であるため、電流の経路も一様に平均化され上述のような単素子の直並列接続構造と見なせる状態を容易に実現することができる。

## 【0060】

このようにマトリックス4に対し粒子5を混合することで非常に簡易な構造でありながら膨大な数の単素子スタック構造を作り出すことができる。注目すべきことは、これらの電氣的に複雑な構造が、構造的には非常に簡単であり、スパインコート等の簡易な方法で作製できるということである。本実施の形態1では粒子としてITOを用いた説明を行ったが、もちろん混合する粒子5はITOに制限されるものではない。たとえば金コロイドなどをはじめとする金属粒子、半導体粒子等でもよい。このように、粒子5はマトリックス4に比較して電気伝導率が低いことが条件であり、マトリックス4から見た場合に電極と見なせるものであれば何でもよい。また、形態としての粒子である必要もなく、製膜した結果マトリックス4から相分離した領域のようなものであってもよい。また、粒子5は互いに異なる特性を持った複数の粒子の混合物であってもよい。粒子5が混合物である場合は素子特性のさらなる向上が期待できるものである。

## 【0061】

既に説明したようにマトリックス4にはそれぞれの特性に応じた最適な電極がある。また最適な陰極6と陽極2がある。本実施の形態1で採用した粒子5はITOであり、仕事関数が約4.8 eVであって、説明で採用したポリフルオレン系化合物群を始めとする多くのマトリックス材料に対して、陽極2として好適なものである。言い換えればマトリックス4に対して陰極6として電子を注入するよりも、陽極2として正電荷(ホール)を注入する方がより適しているといえる。そして実施の形態1ではITOがマトリックス4内に分散されているため、前述した微小な単素子はそのほとんどがITO同士に挟まれている構造になる。すなわちどちらかというと陽極2に適している材料同士に挟まれた構造になっていることになる。

## 【0062】

この構造は素子の効率的な駆動を考えたときに改善の余地がある。粒子5がITOのみからなる場合、粒子5そのものは電氣的に中性であり、注入されるホールと電子は同数である。つまり通電によりホールは容易に注入されても、電子の注入により大きな電位差を必要とする結果、トータルのキャリア量はより注入されにくい電子の注入量によって制限される。これは素子としてみた場合は駆動電圧が上昇することになる。

## 【0063】

そこで、ITOの表面の一部にアルミニウムを蒸着した微粒子を混合する。もちろんこれは蒸着以外にも様々な公知の手法で粒子の一部に金属を付着させることができる。この素子に電圧が印加されると、マトリックス4内の粒子5の陰極6により近い側ではITO部

(12)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

位からホール注入が生じ、陽極 2 に近い側ではアルミニウム部位から電子の注入が生じる。これは、上述した微小な単素子がそれぞれ最適な陽極 2 と陰極 6 に挟まれた配置をとることができるということであり、それぞれのキャリアはそれぞれ適した電極から注入され、その結果として素子の駆動電圧はより低下し、全体の特性を向上させることができる。

【0064】

次に、以上説明した手順で実際に作製された素子の特性について説明を行う。図 6 は本発明の実施の形態 1 における有機 EL 素子の電流と発光輝度の関係を表したグラフ、図 7 は本発明の実施の形態 1 における有機 EL 素子の電圧と電流の関係を表したグラフである。図 6、図 7 において、a は発光層 3 に粒子 5 を含有しない構成をとった素子に対する特性、b は粒子 5 を含有する素子に対する特性である。

19

【0065】

図 6 から、粒子を含有する素子の特性 b は、同一の電流密度において粒子を含有しない素子の特性 a よりも大きな輝度を得ていることが分かる。一方、図 7 に示すように粒子 5 を含有する素子の特性 b は、粒子 5 を含有しない素子の特性 a と同じだけの電流を流すのにより高圧の電圧の印加が必要であることを示している。これは、粒子 5 を含有する素子が単素子の集合体からなっていると等価的にみなせることを示しており、またそれぞれの素子は印加電圧によって形成される電界の方向に直列に接続されているとみなせることから、これは妥当な結果である。

【0066】

図 6 の結果から、粒子 5 を含有する素子は粒子 5 を含まない素子に比較して 100 mA の電流密度時点で約 3 倍の輝度を示している。このことからこの素子はみかけ上単素子が電界方向に 3 段直列接続されたような状態にあることを示している。このみかけ上の単素子積層段数はマトリックス 4 と粒子 5 の混合比率、及び発光層 3 の厚みによって制御することができる。例えば図 6、図 7 の特性 b の素子をそのままの材料構成で発光層 3 の厚みを倍にしたとすると、100 mA の電流密度時点で 4000 cd/m<sup>2</sup> を上回る輝度を期待することができる。もちろんその際の駆動電圧は倍程度に上昇することはいうまでもない。このとき、単素子あたりの印加電圧は厚みに係らず変化しない。つまり全体としての駆動電圧は上昇しても単素子あたりの印加電圧が穏和な条件とすることができ、素子の安定性や寿命を確保したまま高輝度を得ることができる。

20

【0067】

【発明の効果】

以上説明したように本発明の有機 EL 素子によれば、きわめて簡素な素子構成でありながら、単素子が直列接続された構造をさらに直列接続した構成とすることで高輝度、高安定性、長寿命を併せ持つ素子を実現している。素子の作製はたとえばスピンコートなどの簡易な方法で行うことができ、その場合はプロセスもシンプルであり、高価な真空装置を多用することもないため、安価な素子を提供することができる。印加電圧の上昇は実用上数十 V であり、商用電源を考慮すれば簡易な電源で十分対応可能な範囲である。

【0068】

本発明の有機 EL 素子は、今までになかった面状高輝度発光デバイスとして屋内照明など固定式の光源用途をはじめとした幅広い応用を期待することができる。

30

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の実施の形態 1 における有機 EL 素子の全体構成図

【図 2】 本発明の実施の形態 1 における有機 EL 素子の作成手順図

【図 3】 (a) 本発明の実施の形態 1 における粒子を含まない有機 EL 素子の構成図

(b) 本発明の実施の形態 1 における粒子を比較的少量含む有機 EL 素子の構成図

(c) 本発明の実施の形態 1 における粒子を比較的少量に含む有機 EL 素子の構成図

【図 4】 (a) 本実施の形態 1 における粒子を含まない有機 EL 素子内の電界分布の説明

図

(b) 本実施の形態 1 における粒子を含んだ有機 EL 素子内の電界分布の説明図

【図 5】 (a) 本実施の形態 1 における粒子を比較的少量含む有機 EL 素子内のキャリア

50

(13)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

## の流れの説明図

(b) 本実施の形態 1 における粒子を比較的多量に含む有機 EL 素子内のキャリアの流れの説明図

【図 6】 本発明の実施の形態 1 における有機 EL 素子の電流と発光輝度の関係を表したグラフ

【図 7】 本発明の実施の形態 1 における素子有機 EL 素子の電圧と電流の関係を表したグラフ

## 【符号の説明】

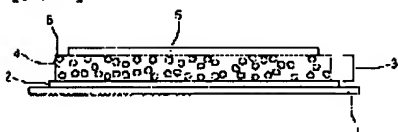
- 1 基板
- 2 陽極
- 3 発光層
- 4 マトリックス
- 5 粒子
- 6 陰極

11 電子の流れを模式化した線

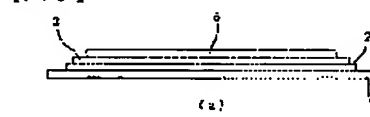
21 ギャップ

10

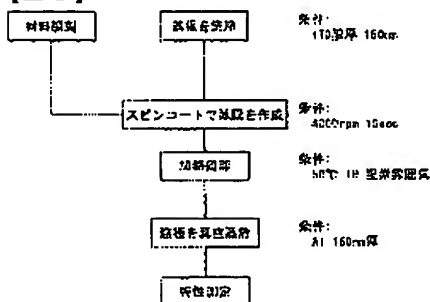
【図 1】



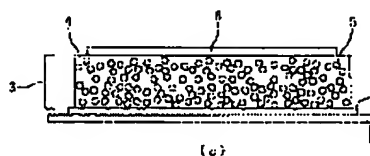
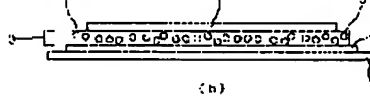
【図 3】



【図 2】



【図 3】



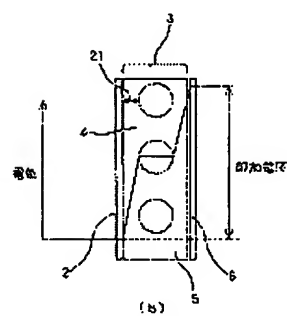
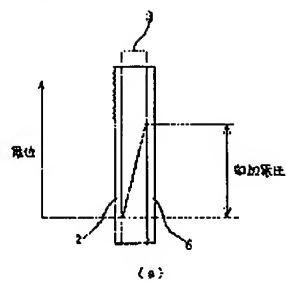
## 材料調製条件:

- ポリフルオレン系高分子をベンゼンに溶解
- 溶液をインクジェット方式で蒸着し、乾燥
- 60°C 温度で 10 分間乾燥

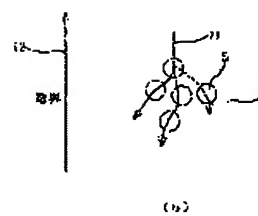
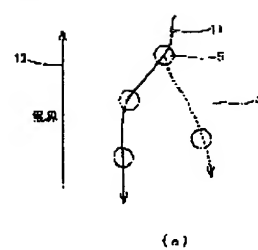
(14)

JP 2004-111085 A 2004.4.8

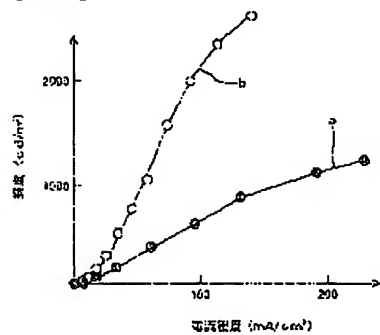
【図 4】



【図 5】



【図 6】



【図 7】

